



①⑨ BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT

⑫ **Offenlegungsschrift**
⑩ **DE 102 43 349 A 1**

⑥① Int. Cl.7:
H 01 M 8/02

②① Aktenzeichen: 102 43 349.6
②② Anmeldetag: 18. 9. 2002
④③ Offenlegungstag: 28. 5. 2003

DE 102 43 349 A 1

③⑩ Unionspriorität:

2001-285129 19. 09. 2001 JP
2001-285159 19. 09. 2001 JP

⑦① Anmelder:

Honda Giken Kogyo K.K., Tokio/Tokyo, JP

⑦④ Vertreter:

Weickmann & Weickmann, 81679 München

⑦② Erfinder:

Ohtani, Teruyuki, Wako, Saitama, JP; Utsunomiya,
Masao, Wako, Saitama, JP; Tsuji, Makoto, Wako,
Saitama, JP

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤④ Separator für eine Brennstoffzelle und Verfahren zur Herstellung desselben

⑤⑦ Ein Separator für eine Brennstoffzelle, umfassend eine Golddeckschicht, welche auf der Oberfläche einer Platte aus nicht-rostendem Stahl gebildet ist, und ein Verfahren zur Herstellung eines Separators, bei welchem ein Abblättern und ein Brechen der Golddeckschicht verhindert werden kann und ein Korrosionswiderstand und Standfestigkeit erhalten werden können, werden bereitgestellt. Leerstellen werden gebildet durch Zwischenkorrosionsbehandlung an einer Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl und die Golddeckschicht ist derart ausgebildet, dass sie in die Leerstellen eingebettet ist. Ein Grenzwert eines Krümmungsradius in Biegungen, bei welchen Abblätterungen oder Brüche in der Golddeckschicht gebildet werden, kann reduziert werden, indem die Gleichung $0,2 \leq 4/d/L \leq 80$ erfüllt wird, wobei L (µm) die durchschnittliche Korngröße der Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl ist und d (µm) die Dicke der Golddeckschicht ist.

DE 102 43 349 A 1

HINTERGRUND DER ERFINDUNG

1. Technisches Gebiet

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft einen Separator für Festpolymerelektrolyt-Brennstoffzellen und betrifft ein Verfahren zur Herstellung des Separators.

2. Stand der Technik

[0002] Bei Festpolymerelektrolyt-Brennstoffzellen wird ein Separator an beiden Seiten einer plattenförmigen Elektrode (MEA: Membranelektrodenanordnung) angebracht, um eine Einheit mit einer geschichteten Struktur zu bilden. Die mehreren Einheiten werden gestapelt, um einen Brennstoffzellenstapel zu bilden. Die MEA ist eine dreilagige Struktur, bei welcher ein aus einem Kunststoff, etwa einem Ionenaustausch-Kunststoff, hergestellte polymerisierte Elektrolytmembran von einem Paar aus Gasdiffusionselektrodenplatten (eine positive Elektrodenplatte und eine negative Elektrodenplatte) gehalten ist. Die Gasdiffusionselektrodenplatte ist aus einer Gasdiffusionslage hergestellt, welche außerhalb einer katalytischen Lage gebildet ist, die die polymerisierte Elektrolytmembran berührt. Der Separator ist in Schichten aufgebaut, um die Gasdiffusionselektrodenplatte der MEA zu kontaktieren. Es sind Gasdurchgänge sowie Kühlmitteldurchgänge gebildet, bei welchen das Gas zwischen der Gasdiffusionselektrodenplatte und dem Separator zirkuliert wird. Bei der Brennstoffzelle wird Wasserstoffgas als ein Brennstoff den Gasdurchgängen zugeführt, welche der Gasdiffusionselektrodenplatte an der negativen Elektrodenseite zugewandt sind. Weiterhin wird ein oxidierendes Gas, wie etwa Sauerstoff oder Luft, den Gasdurchgängen zugeführt, welche der Gasdiffusionselektrodenplatte an der positiven Elektrodenseite zugewandt sind. Dadurch wird durch eine elektrochemische Reaktion Strom erzeugt.

[0003] Der Separator muss Eigenschaften aufweisen, dass durch die katalytische Reaktion des Wasserstoffgases auf der negativen Elektrodenseite erzeugte Elektronen einer externen Schaltung zugeführt werden, während Elektronen von der externen Schaltung der positiven Elektrodenseite zugeführt werden. Als der Separator werden elektrisch leitfähige Werkstoffe verwendet, wie etwa kohlenstoffartige Werkstoffe oder metallartige Werkstoffe. Besonders metallartige Werkstoffe sind vorteilhaft, da sie eine ausgezeichnete mechanische Festigkeit aufweisen und eine Gewichtsverringering und eine kompakte Konstruktion dann gestatten, wenn sie in einer dünnen Plattenform ausgebildet sind. Eine dünne Platte, welche aus metallischen Werkstoffen mit hohem Korrosionswiderstand, wie etwa nicht-rostende Stähle und Titanlegierungen, hergestellt ist und welche als eine geriffelte Platte ausgebildet ist, kann als der metallische Separator erwähnt werden.

[0004] Die folgenden drei Faktoren sollten erwähnt werden, wenn Separatoren der Betriebsumgebung ausgesetzt sind.

[0005] (1) Temperatur: Da die Betriebstemperatur der Brennstoffzelle zwischen Raumtemperatur und ca. 180°C liegt, sind Separatoren Temperaturen in diesem Bereich ausgesetzt.

[0006] (2) pH-Wert: In der Brennstoffzelle wird durch eine Reaktion von Sauerstoff und Wasserstoff Wasser erzeugt und das Wasser wird in der Form von Dampf freigesetzt. Wenn die Temperatur des Wasserdampfes in in dem Separator ausgebildeten Gasdurchgängen abnimmt, haftet kondensiertes Wasser in Tröpfchen an dem Separator an. Das Wasser sammelt sich dann zwischen der MEA und dem Separator, wenn die Menge an anhaftendem Wasser steigt. Dann kontaktiert das an der MEA anhaftende Wasser ohne Weiteres die polymerisierte Elektrolytmembran. Als Folge tritt in der polymerisierten Elektrolytmembran eine Trennung oder dgl. in einen Substituenten auf und der pH-Wert des anhaftenden Wassers sinkt aufgrund der Erzeugung von Wasserstoffionen in dem anhaftenden Wasser. Als Substituent in der Brennstoffzelle ist eine Sulfongruppe typisch. Als das oben erwähnte anhaftende Wasser ist eine Flüssigkeit mit einem Säuregehalt, wie etwa schwefelige Säure, üblich.

[0007] Der oben erwähnte Substituent wird folgendermaßen erklärt. In der Brennstoffzelle werden dem Kathodenkatalysator Wasserstoffionen zugeführt, indem Wasserstoffionen, welche aus Wasserstoff am Katalysator auf der Wasserstoffgas-Zufuhrseite (Anodenseite) erzeugt werden, zu der Oxidiertes-Gas-Zufuhrseite (Kathodenseite) transportiert werden. Dann, durch Reagieren des Wasserstoffs und des oxidierenden Gases auf dem Kathodenkatalysator, wird der Vorgang einer Erzeugung von Wasser zur treibenden Kraft gemacht, sodass kontinuierlich elektrische Leistung erzeugt wird. Daher muss die polymerisierte Elektrolytmembran der Brennstoffzelle eine polymerisierte Elektrolytmembran eines positiven Ionen leitenden Typs sein, welche den Wasserstoff von der Kathodenseite zur Anodenseite bewegen kann. Daher muss in der Seitenkette eines Moleküls der polymerisierten Elektrolytmembran die Kombinationsgruppe der Form vorhanden sein, welche mit dem Wasserstoffion kombiniert. In der Brennstoffzelle wird die oben genannte Funktion erfüllt, indem ein Teil der Moleküle der polymerisierten Elektrolytmembran als der Substituent eines Säuretyps angeordnet ist, welcher mit Wasserstoffionen kombiniert. Da dieser Substituent von einem Säuretyp ist, wird dann, wenn er von der polymerisierten Elektrolytmembran freigesetzt wird, eine Säure erzeugt. Im Allgemeinen wird als dieser Substituent einer von einem starken Säuretyp verwendet, welcher eine starke Bindungskraft mit Wasserstoffionen besitzt, um eine Übertragungseffizienz des Wasserstoffs zu verbessern. Daher wird dieser Substituent freigesetzt, um die Säure zu erzeugen. Die Säure weist einen niedrigen pH-Wert vor.

[0008] (3) Potenzial: Die Separatoren sind auf der Brennstoffgasseite und der Oxidiertes-Gas-Seite angeordnet. Jede Seite bildet die positive Elektrode bzw. die negative Elektrode der Brennstoffzelle. Zwischen den Separatoren wird als ein Potenzialunterschied eine in der Reaktion erhaltene elektromotorische Kraft erzeugt. Im Allgemeinen beträgt ein Potenzialunterschied, welcher durch eine elektromotorische Kraft in der Brennstoffzelle erhalten wird, die Wasserstoff als das Brennstoffgas und die Sauerstoff als das oxidierte Gas verwendet, aus dem folgenden Grund höchstens etwa 1,2 V. Dieser lautet, dass man glaubt, dass die elektromotorische Kraft, welche in der chemischen Reaktion erhalten wird, in der aus Wasserstoff und Sauerstoff Wasser erzeugt wird, in dem Betriebstemperaturbereich einer Brennstoffzelle aus den theoretischen Berechnungen etwa 1,2 V beträgt. Bei einer tatsächlichen Energieerzeugung ist sie diesem numerischen

Wert ähnlich und eine elektromotorische Kraft von etwa 1 bis 1,2 V wird erzeugt. Wenn eine Platte aus austenitischem nicht-rostendem Stahl mit hohem Korrosionswiderstand als der Separator verwendet wird, nimmt die Lösungsrate von Metallionen zu, wenn die elektromotorische Kraft etwa 0,9 V übersteigt. Dadurch wird Korrosion erzeugt.

[0009] Der Separator für Brennstoffzellen ist in Abhängigkeit von jedem oben erwähnten Faktor Temperatur, pH-Wert und Potenzial einer korrosiven Umgebung ausgesetzt. Daher wird dann, wenn ein metallischer Separator verwendet wird, der Separator stark korrodiert, und zwar selbst dann wenn der Separator aus einem Material (z. B. SUS316L) gebildet ist, welches einen hohen Korrosionswiderstand besitzt. Daher ist für den Separator ein Korrosionswiderstand gefordert, welcher in den Betriebsumgebungen von Brennstoffzellen sehr hoch ist. Zusätzlich ist es notwendig, dass der Separator einfach zu einer geriffelten Platte gepresst werden kann, um die Gasdurchgänge und die Kühlmitteldurchgänge auszubilden und dass der Kontaktwiderstand mit anderen Elementen äußerst gering ist, um eine Verringerung der Energieerzeugungsspannung zu vermeiden. Zusätzlich ist es ebenso notwendig, dass der Separator geringe Kosten aufweist, da einige Hundert Separatoren in einem Brennstoffzellenstapel verwendet sein können.

[0010] Man glaubt, dass Separatoren, welche mit einem Metall mit hohem Korrosionswiderstand auf der Fläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl plattiert sind, bei welcher eine Pressbearbeitung einfach ist, als Separatoren für Brennstoffzellen wünschenswert sind. Der Vergleich bezüglich der Korrosionswiderstände von SUS316L aus nicht-rostendem Stahl, Cu, Ag, Pt und Au wurde unter Bedingungen einer pH 3-Lösung von schwefeliger Säure von 90°C und einer Korrosionsstromdichte von 1,2 V und durch jeweiliges Messen dieser Bedingungen ausgeführt. Die folgenden Ergebnisse wurden erhalten: SUS316L: 156 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$, Cu: 98 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$, Ag: 38 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$, Pt: 18 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$, Au: 2 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$. Es ist wünschenswert, dass die Korrosionsstromdichte im Hinblick auf eine Gewährleistung Standfestigkeit in der Praxis 10 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ oder weniger beträgt. Es wurde nachgewiesen, dass Gold ein Metall ist, welches diese Bedingungen erfüllt. Daher ist ein Separator als ein Separator für Brennstoffzellen vielversprechend ist, bei welchem Gold auf die Fläche eines Materials plattiert ist, wie etwa der Platte aus nicht-rostendem Stahl.

[0011] Es kann jedoch gesagt werden, dass die Adhäsion dann nicht gut ist, wenn eine Goldplattierung auf nicht-rostendem Stahl mit herkömmlichen Verfahren durchgeführt wird, da die Goldplattierung lediglich physikalisch an dem nichtrostenden Stahl anhaftet. Daher wird die Goldplattierung dann, wenn ein Separator, bei welchem ein äußerst geringer Kurvenradius bei einer Biegung in einem geriffelten Querschnitt durch Pressbearbeitung gebildet wird, aufgrund eines Adhäsionsversagens leicht abgeblättert. Wenn das Abblättern auftritt, nimmt der Kontaktwiderstand zwischen der Goldplattierung und der Platte aus nicht-rostendem Stahl, welches das Basismetall ist, zu und es kann kein niedriger Kontaktwiderstand erhalten werden. Somit ist es nicht möglich, für die Brennstoffzelle notwendige Anforderungen an einen Korrosionswiderstand zu erfüllen, wenn die abgeblätterte Goldplattierung abfällt und wenn während einer Pressbearbeitung Sprünge in der Plattierungsschicht gebildet werden, da eine freigelegte Platte aus nicht-rostendem Stahl leicht korrodiert wird.

ABRISS DER ERFINDUNG

[0012] Es ist daher eine Aufgabe der vorliegenden Erfindung, einen Separator für Brennstoffzellen und ein Verfahren zur Herstellung des Separators anzugeben, bei welchem ein Abblättern und Sprünge in einer Goldplattierungslage, die auf einer Fläche einer Platte aus nicht-rostendem Stahl gebildet ist, verhindert werden können und bei welchem der Korrosionswiderstand und die Standfestigkeit beträchtlich verbessert werden können.

[0013] Die vorliegende Erfindung stellt einen Separator für eine Brennstoffzelle bereit, umfassend:
eine Platte aus nicht-rostendem Stahl;
eine Golddeckschicht, welche an einer Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl ausgebildet ist;
Leerstellen, welche durch Zwischenkornkorrosion in der Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl ausgebildet sind;
wobei die Golddeckschicht derart ausgebildet ist, dass sie in die Leerstellen eingebettet ist.

[0014] Als eine Platte aus nicht-rostendem Stahl wird beispielsweise eine Platte aus austenitischem nicht-rostendem Stahl verwendet. Die Korngrenzen an der Oberfläche sind dann Austenitkorngrenzen. Bei dem Separator für eine Brennstoffzelle dieser Erfindung wird der Korrosionswiderstand verbessert durch Ausbilden der Golddeckschicht an der Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl, wobei die Golddeckschicht in die Leerstellen eingebettet ist, welche auf der Fläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl durch Zwischenkornkorrosion gebildet sind. Daher haftet die Golddeckschicht der Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl fest an, indem sie darin körperlich verankert ist. Dies verhindert somit, dass die Golddeckschicht in Biegungen abgeblättert und zerbrochen wird, sodass sie eine ausgezeichnete Standfestigkeit aufweist, und zwar selbst dann, wenn eine Pressbearbeitungenbearbeitung durchgeführt wird, um Gasdurchgänge und Kühlmitteldurchgänge auszubilden.

[0015] Die vorliegende Erfindung stellt ein Verfahren zur Herstellung eines Separators für Brennstoffzellen bereit, welches geeignet ist zur Herstellung eines Separators wie dem oben beschriebenen. Das Verfahren umfasst: Durchführen einer Zwischenkornkorrosionsbehandlung an einer Oberfläche einer Platte aus nicht-rostendem Stahl; Plattieren einer Golddeckschicht auf die behandelte Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl; und dann Pressumformen der Platte aus nicht-rostendem Stahl. Es ist möglich, z. B. einen chemischen Ätzprozess als ein Verfahren zur Ausführung einer Zwischenkornkorrosionsbehandlung an der Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl auszuwählen und die Leerstellen auf der Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl durch die Zwischenkornkorrosion auszubilden. Als ein Verfahren, um das Gold auf der Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl zu plattieren, kann ein typisches Plattierverfahren ausgewählt werden. Wenn die Goldplattierungsschicht gebildet wird, wird ein Teil der Goldplattierungsschicht in die Leerstellen eingebettet, welche durch die Zwischenkornkorrosionsbehandlung gebildet sind. Es ist dadurch möglich, den Separator der Erfindung, wie etwa den oben beschriebenen, herzustellen.

[0016] Bei der Erfindung ist es wünschenswert, dass die Korngröße der Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl klein ist und eine große Anzahl von Korngrenzen vorhanden sind, da die Adhäsion der Golddeckschicht durch Erhöhung der Anzahl an bei der Zwischenkornkorrosionsbehandlung gebildeten Leerstellen zunimmt. Dann jedoch, wenn

die Golddeckschicht eine Goldplattierungsschicht ist, nehmen die Fehlstellen zu, wenn zu viele Leerstellen vorhanden sind, um deren Dichte zu erhöhen, da in der Goldplattierungsschicht an den Korngrenzen leicht Vertiefungsfehlstellen auftreten. Unter solchen Bedingungen wird dann, wenn eine Pressbearbeitung ausgeführt wird, jede der Fehlstellen durch Sprünge verbunden, wodurch Brüche in der Goldplattierungsschicht gebildet werden. Daher ist es wünschenswert, dass die Korngröße der Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl von einer Größe in einem bestimmten Bereich ist. Darüber hinaus hängt die oben genannte Verankerungswirkung in großem Maße von der Dicke der Golddeckschicht ab. Die Verankerungswirkung wird dann gut erreicht, wenn die Golddeckschicht einigermaßen dünn ist. Daher ist es möglich, die optimale Korngröße im Verhältnis zur Golddeckschicht zu steuern, indem der Verankerungsabstand pro Einheitsvolumen der Golddeckschicht gesteuert wird. Als Folge einer Untersuchung einer Mehrzahl von Aspekten dieses Punktes haben die Erfinder herausgefunden, dass es möglich ist, eine ausreichende Verankerungswirkung zu erhalten, wenn $0,2 \leq 4/dL \leq 80$ erfüllt ist (L (μm): die durchschnittliche Korngröße der Fläche einer Platte aus nicht-rostendem Stahl, und d (μm): Dicke der Golddeckschicht). Daher ist diese Bedingung eine bevorzugte Ausführungsform der Erfindung.

[0017] Zusätzlich stellt die vorliegende Erfindung ein Verfahren zur Herstellung eines Separators für eine Brennstoffzelle bereit, wobei der Separator eine metallische Platte aufweist, deren Oberfläche mit einer Golddeckschicht gebildet ist, wobei das Verfahren umfasst: Bilden der Golddeckschicht auf der Oberfläche der metallischen Platte als einem Basismaterial und dann Druckumformen der metallischen Platte. Gemäß der Erfindung wird der physikalische Verankerungseffekt erhalten, da die Golddeckschicht durch die Druckumformung in die Leerstellen eingebettet wird, welche an Korngrenzen in der Oberfläche der metallischen Platte gebildet sind. Daher ist die Adhäsion der Golddeckschicht an der metallischen Platte in beträchtlichem Maße erhöht. Darüber hinaus werden Fehlstellen, wie etwa Vertiefungen und Sprünge, repariert, indem diese Fehlstellen durch das Druckumformen zerdrückt werden, wenn vor der Druckumformung Fehlstellen in der Golddeckschicht vorhanden sind. Als Folge wird durch Bereitstellen der Golddeckschicht eine drastische Verbesserung des Korrosionswiderstands und der Standfestigkeit erhalten. Darüber hinaus wird die Kontaktfläche der Golddeckschicht erhöht, damit die oben genannten Fehlstellen repariert werden, und der Kontaktwiderstand ist daher reduziert.

[0018] Bei der Erfindung ist eine Ausführungsform bevorzugt, welche die folgende Bedingung erfüllt: Dies bedeutet, es ist günstig, dass dann, wenn die durchschnittliche Dicke der Metallplatte vor einem Druckumformen d_B beträgt und die durchschnittliche Dicke der Golddeckschicht vor einem Druckumformen d_S beträgt, jede der durchschnittlichen Dicken d_B und d_S , welche Werte nach dem Druckumformen sind, die folgenden Gleichungen erfüllen.

$$0,9 \times (d_B + d_S) \leq d'_B + d'_S \quad (1)$$

$$0,1 \times d_S \leq d'_S \leq 0,9 \times d_S \quad (2)$$

[0019] Die Gleichung (1) zeigt, dass die Gesamtdicke des Separators nach einem Druckumformen 90% oder mehr der Gesamtdicke des Separators vor einem Druckumformen ist. Die Gleichung (2) zeigt, dass die Dicke der Golddeckschicht nach einem Druckumformen in einem Bereich von 10 bis 90% der Dicke der Golddeckschichtlage vor einem Druckumformen liegt.

[0020] Fig. 1 ist ein schematischer Querschnitt des Separators der Erfindung. Wie in dieser Figur gezeigt ist, ist spezifiziert, dass die Dicke der Golddeckschichten 2 in der Erfindung ein Teil ohne Kristallkörner 1a ist, welche eine Metallplatte 1 bilden. Die Dicke der Metallplatte 1 ist ein Teil von der ganz äußeren Oberfläche eines Kristallkorns 1a bis zur Basisebene. Fig. 1 ist ein Querschnitt des Separators nach einem Druckumformen. Gemäß der Figur befinden sich in der Oberfläche der Metallplatte Leerstellen 1b mit Kerben aufgrund des Vorhandenseins der Korngrenzen 1. Die Golddeckschichten 2 sind in den Leerstellen 1b durch das Druckumformen eingebettet und die Adhäsion der Golddeckschichten 2 an der Metallplatte 1 ist durch Erzeugen der Verankerungswirkung verbessert.

[0021] Die Gründe für die Gleichung (1) sind wie folgt. Wenn die Gesamtdicke des Separators nach einem Druckumformen geringer als 90% der Gesamtdicke des Separators vor einer Druckumformung ist, wird die Kaltverfestigung, welche durch plastische Verformung der Metallplatte erzeugt wird, die Basismetall ist, regelmäßig. Es ist nicht möglich, Erweichungsprozesse, wie etwa Tempern durchzuführen, da Gold in den Separator diffundieren würde, in welchem die Golddeckschicht gebildet ist. Daher tritt eine Kaltverfestigung auf, wenn die Druckumformung in einem Bereich durchgeführt wird, welcher von der Gleichung (1) abweicht. Als Folge werden in der metallischen Platte während eines Umformens des Separators Brüche gebildet. Daher glaubt man, dass die Ausführungsform, welche die Gleichung (1) erfüllt, bevorzugt ist, um eine Bildung von Brüchen aufgrund der Kaltverfestigung der Metallplatte zu verhindern. Darüber hinaus lauten Gründe für die Gleichung (2) wie folgt. Die Spannung in der Grenzfläche zwischen der Metallplatte und der Golddeckschicht ist dann konzentriert und die Grenzfläche ist dann aufgeraut, wenn die Dicke der Golddeckschicht nach dem Druckumformen geringer als 10% der Dicke der Golddeckschicht vor dem Druckumformen ist. Im Gegensatz dazu ist ein Reparieren der Vertiefungen und der Sprünge dann nicht ausreichend, wenn die Dicke der Golddeckschicht nach dem Druckumformen größer als 90% der Dicke der Golddeckschicht vor dem Druckumformen ist. Daher glaubt man, dass die Ausführungsform bevorzugt ist, welche die Gleichung (2) erfüllt.

KURZE ERLÄUTERUNG DER ZEICHNUNGEN

[0022] Fig. 1 ist ein Konzept-Querschnitt des Separators dieser Erfindung.

[0023] Fig. 2 ist ein Diagramm, welches die Beziehung zwischen einer relationalen Gleichung $4/dL$ und dem Grenzwert eines Krümmungsradius in der Biegung zeigt; wobei L (μm) die durchschnittliche Korngröße der Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl ist, welches das Basismetall ist, wobei d (μm) die Dicke der Golddeckschicht ist und wobei L (μm) und d (μm) in den Ausführungsformen dieser Erfindung gemessen sind.

[0024] Fig. 3 ist ein Diagramm, welches die Beziehung zwischen einem Verhältnis der Dicken von Probestücken nach

einem Druckumformen zu den Dicken von Probestücken vor einem Druckumformen in den Ausführungsformen dieser Erfindung und Flächenverhältnissen von Brüchen im Basismetall zeigt.

[0025] Fig. 4 ist ein Diagramm, welches die Beziehung zwischen einem Verhältnis der Dicke der Golddeckschicht nach einem Druckumformen zu der Dicke der Golddeckschicht vor einem Druckumformen in Ausführungsformen der Erfindung und Flächenverhältnissen von Fehlstellen in der Golddeckschicht zeigt.

AUSFÜHRLICHE BESCHREIBUNG DER ERFINDUNG

[0026] Eine Ausführungsform der Erfindung wird im Folgenden mit Bezugnahme auf die Figuren erläutert.

[0027] Es wurde eine große Anzahl an Probestücken vorbereitet, welche aus nichtrostendem Stahl (der SUS316L entspricht) gebildet waren, dessen Zusammensetzung in Tabelle 1 gezeigt ist, und welche 100 mm × 100 mm quadratische Platten mit einer Dicke von 0,2 mm waren und deren durchschnittliche Korngröße L an der Oberfläche 1,5 µm oder 5 µm betrug.

Tabelle 1

Zusammensetzung von Probestücken (Platten aus nicht-rostendem Stahl) (Masse-%)

C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	Fe
0,03	0,5	2	0,04	0,03	13	17	2,5	Gleichgewicht

[0028] Diese Probestücke wurden in drei Gruppen A, B und C klassifiziert. Weiterhin wurden in den Probestücken einer jeden Gruppe die Korngrenzen in der Oberfläche durch Verwendung ätzender chemischer Flüssigkeiten verschiedener Typen korrodiert. Die ätzenden chemischen Flüssigkeiten waren von den folgenden drei Typen:

Gruppe A: Salpetersäure 10%, Salzsäure 4%, 50°C Bad

Gruppe B: Salpetersäure 20%, Salzsäure 8%, 50°C Bad

Gruppe C: Salpetersäure 25%, Salzsäure 50%, Glycerin 25%.

[0029] Als Nächstes wurde die Golddeckschicht, bei welcher die Dicke unterschiedlich war, auf die Oberfläche eines jeden Teststücks in jeder Gruppe aufgetragen.

[0030] Ein geschmolzenes Salz der Goldplattierungslage enthielt Goldkaliumcyanid: 12 g/l, Kaliumcitrat: 125 g/l, und EDTA-Kobaltsalz: 3 g/l, wobei die Dicke der Goldplattierungslage durch richtiges Ändern der Temperatur des geschmolzenen Salzes, der Stromdichte und der Zeit eingestellt wurde. Nachdem die Goldplattierungsschicht gebildet war, wurde, wenn die durchschnittliche Korngröße der Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl als L (µm) definiert war und die Dicke der Goldplattierungslage als d (µm) definiert war, $4/d/L$ berechnet. Dann wurde der Grenzwert eines Krümmungsradius in der Biegung untersucht, in welcher Abblätterungen oder Brüche in der Goldplattierungsschicht beim Biegen eines jeden Probestücks ausgebildet waren. Die Beziehung zwischen dem $4/d/L$ -Wert und dem Grenzwert eines Krümmungsradius in der Biegung ist wie in Fig. 2 gezeigt.

[0031] Gemäß Fig. 2 ist zu sehen, dass dann, wenn die durchschnittliche Korngröße der Oberfläche einer Platte aus nicht-rostendem Stahl als L (µm) definiert war und die Dicke der Goldplattierungslage als d (µm) definiert war, der Wert von $4/d/L$ in einem Bereich von $0,2 \leq 4/d/L \leq 80$ lag und der Krümmungsradius klein war, d. h. bei etwa 100 µm. Im Gegensatz dazu nahm dann, wenn der Wert von $4/d/L$ von diesem Bereich abwich, der Grenzwert eines Krümmungsradius in der Biegung auffällig zu. Daher wurde in einem Bereich von $0,2 \leq 4/d/L \leq 80$ bestätigt, dass ein Separator erhalten werden kann, welcher über eine lange Zeit eine sehr herausragende Standfestigkeit beibehalten kann, indem eine Bildung von Abblätterungen oder Brüchen in der Goldplattierungsschicht verhindert wird.

[0032] Als Nächstes wurde eine große Anzahl von Probestücken vorbereitet, welche aus nicht-rostendem Stahl (der SUS316L entspricht) mit der in Tabelle 1 gezeigten Zusammensetzung gebildet sind und welche quadratische Platten von 100 mm × 100 mm mit 0,2 mm Dicke waren.

[0033] Die Goldplattierungslage, deren Dicke 0,5 µm betrug, wurde an der Oberfläche dieser Probestücke unter den folgenden Bedingungen gebildet. Das geschmolzene Salz der Goldplattierungslage enthielt Goldkaliumcyanid: 12 g/l, Kaliumcitrat: 125 g/l, und EDTA-Kobaltsalz: 3 g/l, die Temperatur des geschmolzenen Salzes betrug 35°C, die Stromdichte betrug 1 A/dm² und die Verarbeitungszeit betrug 30 Sekunden. Als Nächstes wurde das Druckumformen durch Veränderung eines Drucks für diese Probestücke durchgeführt, bei welchen die Goldplattierungslage gebildet war. Nach dem Druckumformen wurden in jedem Teststück jeweils die Gesamtdicke des Separators, die Dicke der Goldplattierungsschicht, das Flächenverhältnis von in einer Platte aus nicht-rostendem Stahl, welches ein Basismetall ist, gebildeten Brüchen und das Flächenverhältnis von Fehlstellen (wie etwa Vertiefungen und Sprünge) an der Oberfläche der Goldplattierungsschicht untersucht. Die Beziehung zwischen einem Verhältnis der Dicke des Probestücks nach dem Druckumformen zur Dicke des Probestücks vor dem Druckumformen in den Ausführungsformen der Erfindung und dem Flächenverhältnis von Brüchen in dem Basismetall sind in Fig. 3 gezeigt. Die Beziehung zwischen einem Verhältnis der Dicke der Goldplattierungsschicht nach dem Druckumformen zu der Dicke der Goldplattierungsschicht vor dem Druckumformen und dem Flächenverhältnis von Fehlstellen in der Goldplattierungslage ist in Fig. 4 gezeigt.

[0034] Bei Fig. 3 ist gezeigt, dass dann, wenn die Gesamtdicke des Separators nach dem Druckumformen 90% oder mehr der Gesamtdicke des Separators vor dem Druckumformen beträgt, das Flächenverhältnis der in dem Basismetall

ausgebildeten Brüche 0% beträgt. Im Gegensatz dazu ist das Flächenverhältnis der in dem Basismetall ausgebildeten Brüche dann extrem groß, wenn die Gesamtdicke des Separators nach dem Druckumformen geringer als 90% der Gesamtdicke des Separators vor dem Druckumformen ist. Darüber hinaus ist bei Fig. 4 gezeigt, dass dann, wenn die Dicke der Goldplattierungsschicht nach dem Druckumformen 90% oder weniger der Dicke der Goldplattierungsschicht vor dem Druckumformen beträgt, das Flächenverhältnis der in der Goldplattierungsschicht ausgebildeten Fehlstellen 0% beträgt. Im Gegensatz dazu ist das Flächenverhältnis der in der Goldplattierungsschicht ausgebildeten Fehlstellen dann extrem erhöht, wenn die Dicke der Goldplattierungsschicht nach einem Druckumformen größer als 90% der Dicke der Goldplattierungsschicht vor dem Druckumformen ist. Es ist jedoch auch gezeigt, dass dann, wenn die Dicke der Goldplattierungsschicht nach dem Druckumformen geringer als 10% der Dicke der Goldplattierungsschicht vor dem Druckumformen ist, das Kristallkorn des Basismetalls in der Grenzfläche zwischen dem nicht-rostenden Stahl und der Goldplattierungsschicht in der Grenzfläche abgeblättert und aufgeraut war. Daher wurde bestätigt, dass ein Separator mit einer drastischen Verbesserung des Korrosionswiderstand und der Standfestigkeit erhalten werden könnte, wenn die folgenden Bedingungen erfüllt sind: Die Gesamtdicke des Separators nach dem Druckumformen beträgt 90% oder mehr der Gesamtdicke des Separators vor dem Druckumformen und die Dicke der Goldplattierungsschicht nach dem Druckumformen liegt in einem Bereich von 10 bis 90% der Dicke der Goldplattierungsschicht vor dem Druckumformen.

[0035] Ein Separator für eine Brennstoffzelle, umfassend eine Golddeckschicht, welche auf der Oberfläche einer Platte aus nicht-rostendem Stahl gebildet ist, und ein Verfahren zur Herstellung eines Separators, bei welchem ein Abblättern und ein Brechen der Golddeckschicht verhindert werden kann und ein Korrosionswiderstand und Standfestigkeit erhalten werden können, werden bereitgestellt. Leerstellen werden gebildet durch Zwischenkornkorrosionsbehandlung an einer Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl und die Golddeckschicht ist derart ausgebildet, dass sie in die Leerstellen eingebettet ist. Ein Grenzwert eines Krümmungsradius in Biegungen, bei welchen Abblättern oder Brüche in der Golddeckschicht gebildet werden, kann reduziert werden, indem die Gleichung $0,2 \leq 4/d/L \leq 80$ erfüllt wird, wobei L (μm) die durchschnittliche Korngröße der Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl ist und d (μm) die Dicke der Golddeckschicht ist.

Patentansprüche

1. Separator für eine Brennstoffzelle, umfassend:

eine Platte aus nicht-rostendem Stahl;

eine Golddeckschicht, welche an einer Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl ausgebildet ist;

Leerstellen, welche durch Zwischenkornkorrosion in der Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl ausgebildet sind;

wobei die Golddeckschicht derart ausgebildet ist, dass sie in den Leerstellen eingebettet ist.

2. Separator für eine Brennstoffzelle nach Anspruch 1, bei welchem der Separator die Gleichung $0,2 \leq 4/d/L \leq 80$ erfüllt (L (μm): die durchschnittliche Korngröße der Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl, d (μm): Dicke der Golddeckschicht).

3. Verfahren zur Herstellung eines Separators für eine Brennstoffzelle, umfassend:

Durchführen einer Zwischenkornkorrosionsbehandlung an einer Oberfläche einer Platte aus nicht-rostendem Stahl;

Plattieren einer Golddeckschicht auf die behandelte Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl; und dann

Pressumformen der Platte aus nicht-rostendem Stahl.

4. Verfahren zur Herstellung eines Separators für eine Brennstoffzelle nach Anspruch 3, bei welchem der Separator die Gleichung $0,2 \leq 4/d/L \leq 80$ erfüllt (L (μm): die durchschnittliche Korngröße der Oberfläche der Platte aus nicht-rostendem Stahl, d (μm): Dicke der Golddeckschicht).

5. Verfahren zur Herstellung eines Separators für eine Brennstoffzelle, bei welchem der Separator eine Metallplatte aufweist, deren Oberfläche mit einer Golddeckschicht ausgebildet ist, wobei das Verfahren umfasst:

Ausbilden der Golddeckschicht auf der Oberfläche der Metallplatte; und dann

Druckumformen der Metallplatte.

6. Verfahren zur Herstellung eines Separators für eine Brennstoffzelle nach Anspruch 5, bei welchem die folgenden Gleichungen

$$0,9 \times (dB + dS) \leq d'B + d'S$$

$$0,1 \times dS \leq d'S \leq 0,9 \times dS$$

erfüllt sind (dB ist eine durchschnittliche Dicke der Metallplatte vor einem Druckumformen, d'B ist eine durchschnittliche Dicke der Metallplatte nach einem Druckumformen, dS ist eine durchschnittliche Dicke der Golddeckschicht vor einem Druckumformen und d'S ist eine durchschnittliche Dicke der Golddeckschicht nach einem Druckumformen).

Hierzu 2 Seite(n) Zeichnungen

Fig. 1

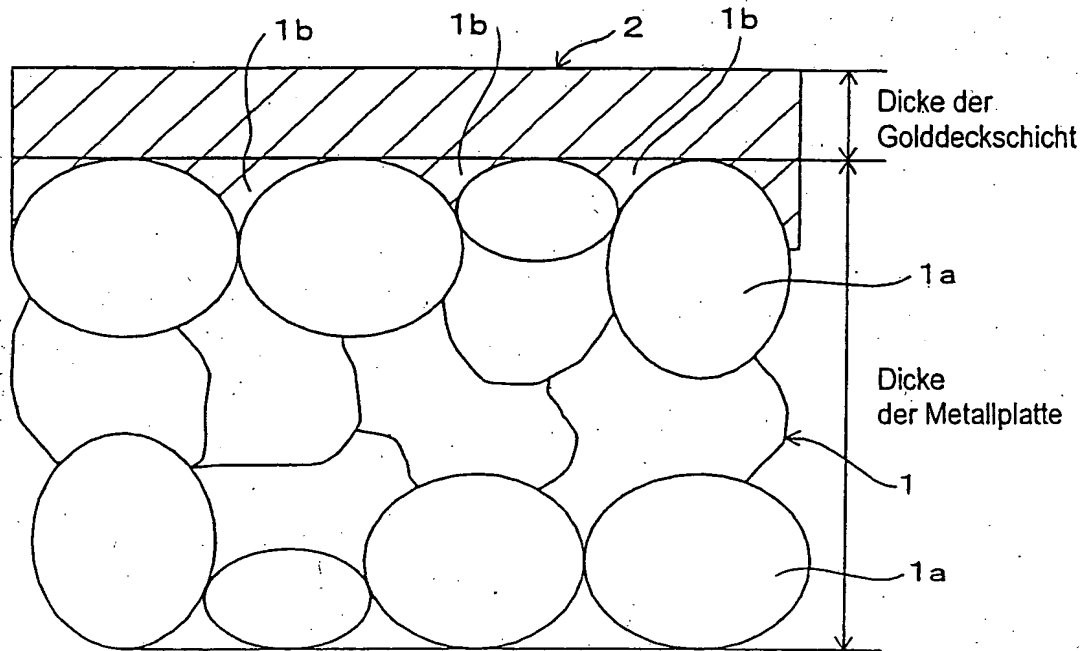


Fig. 2

Kleinsten Wert eines Krümmungsradius in der Biegung,
in welcher Abblätterungen oder Brüche in der
Goldplattierungslage nicht ausgebildet sind (μm)

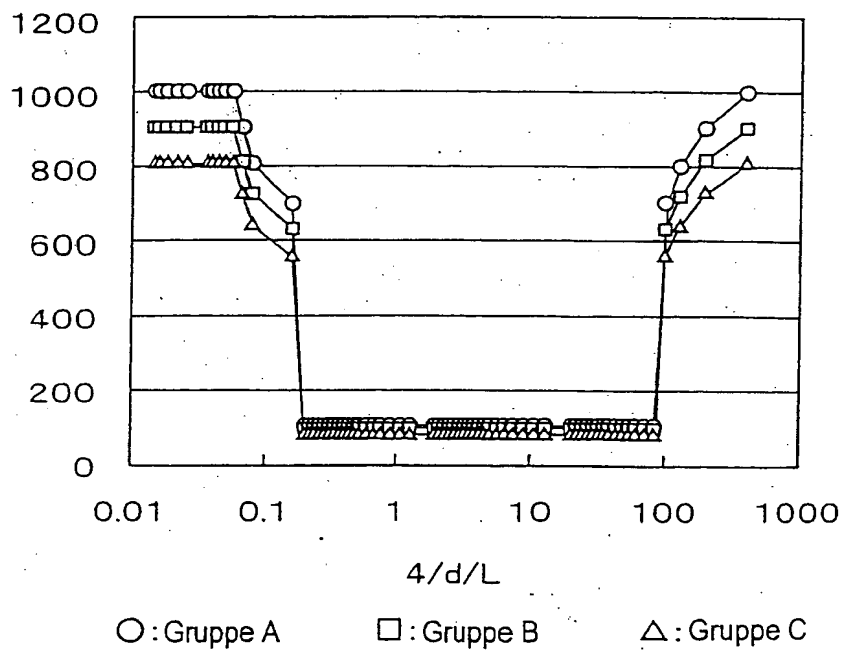


Fig. 3

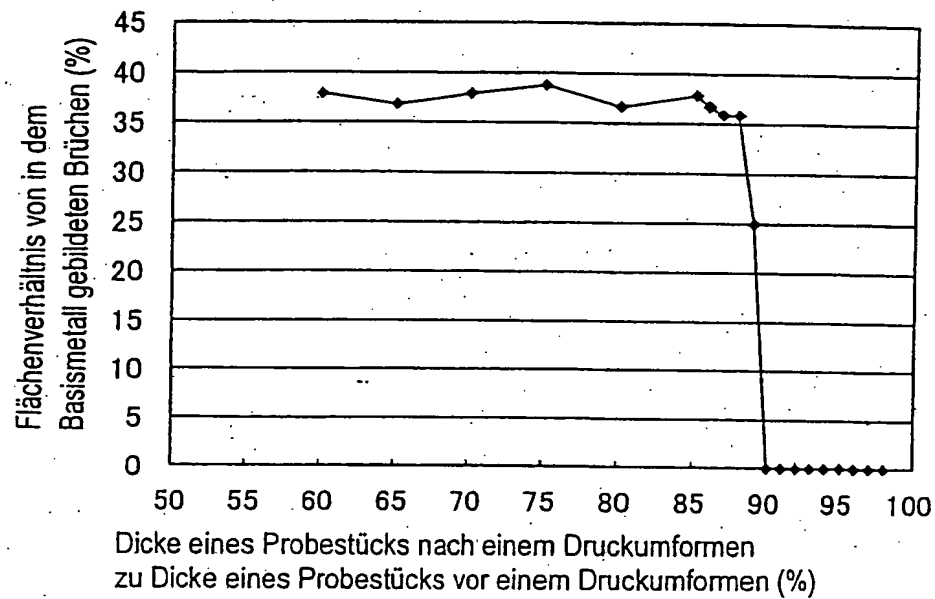
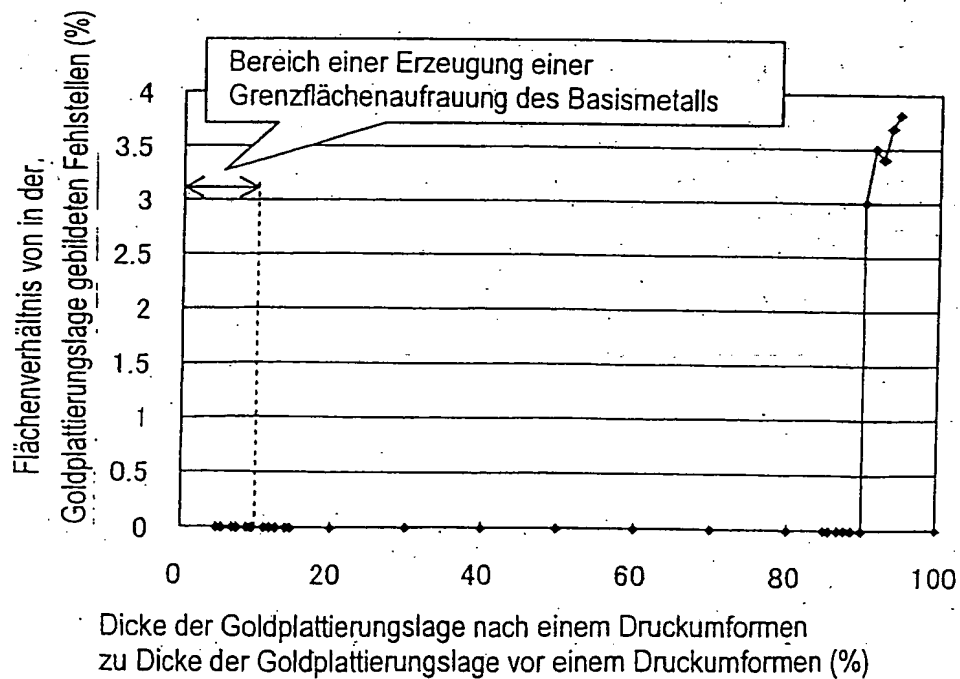


Fig. 4



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.